

## End of Result Set

☐  

L3: Entry 1 of 1

File: DWPI

Jul 1, 1998

DERWENT-ACC-NO: 1998-335958

DERWENT-WEEK: 200234

COPYRIGHT 2003 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Organo-electroluminescent device, which emits red light - comprises, between electrodes, an organic layer containing a luminescent zone containing quaterylene or a derivative

INVENTOR: ISHIBASHI, T; TAMURA, S

PATENT-ASSIGNEE:

ASSIGNEE

CODE

SONY CORP

SONY

PRIORITY-DATA: 1996JP-0350713 (December 27, 1996)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE	PAGES	MAIN-IPC
EP 851715 A1	July 1, 1998	E	022	H05B033/14
DE 69711013 E	April 18, 2002		000	H05B033/14
<u>JP 10183112 A</u>	July 14, 1998		013	C09K011/06
US 5858564 A	January 12, 1999		000	H05B033/00
KR 98064694 A	October 7, 1998		000	H05B033/00
EP 851715 B1	March 13, 2002	E	000	H05B033/14

DESIGNATED-STATES: AL AT BE CH DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LT LU LV MC MK NL PT RO SE SI  
DE FR GB

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DATE	APPL-NO	DESCRIPTOR
EP 851715A1	December 17, 1997	1997EP-0122303	
DE 69711013E	December 17, 1997	1997DE-0611013	
DE 69711013E	December 17, 1997	1997EP-0122303	
DE 69711013E		EP 851715	Based on
JP 10183112A	December 27, 1996	1996JP-0350713	
US 5858564A	December 18, 1997	1997US-0993863	
KR 98064694A	December 26, 1997	1997KR-0074422	
EP 851715B1	December 17, 1997	1997EP-0122303	

INT-CL (IPC): C09 K 11/06; H05 B 33/00; H05 B 33/14; H05 B 33/26

ABSTRACTED-PUB-NO: EP 851715A

BASIC-ABSTRACT:

An electroluminescent device having a cathode, an anode and, between the electrodes, an organic layer containing a luminescent zone, contains quaterylene (QT) or a derivative in the luminescent zone as the luminescent material.

Also claimed is a self-luminous display emitting the 3 primary colours red, green and blue, such that light is emitted from a device as above.

Preferably the QT is of formula (I), where R1-R4 = H, alkyl, alkoxy or (substituted) phenyl. The luminescent zone is a hole-transport or electron-transport layer of an organic compound containing the QT, or the electron-transport layer may serve as a luminescent layer and contain the QT, or the hole-transport and electron-transport layers of organic compounds may hold between them a luminescent layer of organic compound containing the QT.

USE - In a self-luminous flat display using an organic thin film as the luminescent layer, e.g. a computer monitor or a television screen.

ADVANTAGE - The device emits red light with high colour purity and a stable, high luminance.

ABSTRACTED-PUB-NO:

EP 851715B

EQUIVALENT-ABSTRACTS:

An electroluminescent device having a cathode, an anode and, between the electrodes, an organic layer containing a luminescent zone, contains quaterrylene (QT) or a derivative in the luminescent zone as the luminescent material.

Also claimed is a self-luminous display emitting the 3 primary colours red, green and blue, such that light is emitted from a device as above.

Preferably the QT is of formula (I), where R1-R4 = H, alkyl, alkoxy or (substituted) phenyl. The luminescent zone is a hole-transport or electron-transport layer of an organic compound containing the QT, or the electron-transport layer may serve as a luminescent layer and contain the QT, or the hole-transport and electron-transport layers of organic compounds may hold between them a luminescent layer of organic compound containing the QT.

USE - In a self-luminous flat display using an organic thin film as the luminescent layer, e.g. a computer monitor or a television screen.

ADVANTAGE - The device emits red light with high colour purity and a stable, high luminance.

US 5858564A

An electroluminescent device having a cathode, an anode and, between the electrodes, an organic layer containing a luminescent zone, contains quaterrylene (QT) or a derivative in the luminescent zone as the luminescent material.

Also claimed is a self-luminous display emitting the 3 primary colours red, green and blue, such that light is emitted from a device as above.

Preferably the QT is of formula (I), where R1-R4 = H, alkyl, alkoxy or (substituted) phenyl. The luminescent zone is a hole-transport or electron-transport layer of an organic compound containing the QT, or the electron-transport layer may serve as a luminescent layer and contain the QT, or the hole-transport and electron-transport layers of organic compounds may hold between them a luminescent layer of organic compound containing the QT.

USE - In a self-luminous flat display using an organic thin film as the luminescent layer, e.g. a computer monitor or a television screen.

ADVANTAGE - The device emits red light with high colour purity and a stable, high luminance.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/13

TITLE-TERMS: ORGANO ELECTROLUMINESCENT DEVICE EMIT RED LIGHT COMPRISE ELECTRODE ORGANIC LAYER CONTAIN LUMINESCENT ZONE CONTAIN DERIVATIVE

DERWENT-CLASS: E14 L03 U11 U14 X26

CPI-CODES: E08-A; L03-C04; L03-G05; N02-A; N02-F; N05-B;

EPI-CODES: U11-A15; U14-J; X26-J;

CHEMICAL-CODES:

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 許出願公開番号

特開平10-183112

(43)公開日 平成10年(1998) 7月14日

(51)Int.Cl.<sup>a</sup>

識別記号

F I

C 0 9 K 11/06

C 0 9 K 11/06

Z

H 0 5 B 33/14

H 0 5 B 33/14

審査請求 未請求 請求項の数10 O L (全 13 頁)

(21)出願番号 特願平8-350713

(22)出願日 平成8年(1996)12月27日

(71)出願人 000002185

ソニー株式会社

東京都品川区北品川6丁目7番35号

(72)発明者 田村 眞一郎

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内

(72)発明者 石橋 義

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社内

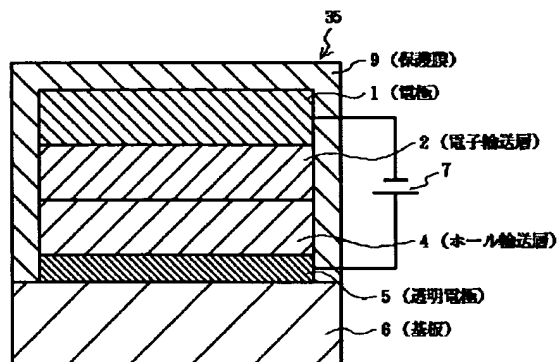
(74)代理人 弁理士 逢坂 宏

(54)【発明の名称】 電界発光素子

(57)【要約】

【課題】 赤色の安定な発光が得られる有機E L素子を提供すること。

【解決手段】 基板6上に透明電極5、有機ホール輸送層4、有機電子輸送層2、金属電極1を順次積層した有機E L素子35の有機ホール輸送層4又は有機電子輸送層2に、発光材料としてクォータテリレン又はその誘導体を含有させる。若しくは、クォータテリレン又はその誘導体を用いた独立の発光層を有機ホール輸送層4及び有機電子輸送層2の間に設ける。



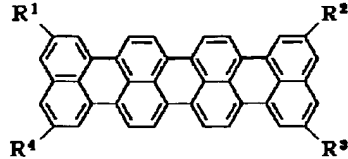
## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 発光領域を含む有機層が電極上に設けられている電界発光素子において、前記発光領域にクォータテリレン又はその誘導体が発光材料として用いられていることを特徴とする電界発光素子。

【請求項2】 前記クォータテリレン又はその誘導体が下記の一般式で表される、請求項1に記載した電界発光素子。

## 【化1】

一般式:



(但し、この一般式において、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>及びR<sup>4</sup>は水素原子、アルキル基、アルコキシ基、又は置換若しくは無置換のフェニル基を表し、互いに同一であってよく、異なっていてよい。)

【請求項3】 前記発光領域が主として有機ホール輸送層であり、このホール輸送層に前記クォータテリレン又はその誘導体が含まれている、請求項1に記載した電界発光素子。

【請求項4】 前記発光領域が主として有機電子輸送層であり、この電子輸送層に前記クォータテリレン又はその誘導体が含まれている、請求項1に記載した電界発光素子。

【請求項5】 前記クォータテリレン又はその誘導体が、有機電子輸送層兼発光層に用いられている、請求項1に記載した電界発光素子。

【請求項6】 有機ホール輸送層と有機電子輸送層との間に設けられた有機発光層に前記クォータテリレン又はその誘導体が含まれている、請求項1に記載した電界発光素子。

【請求項7】 光学的に透明な基体上に、陽極、有機ホール輸送層、有機電子輸送層、及び陰極が順次積層されている、請求項3に記載した電界発光素子。

【請求項8】 光学的に透明な基体上に、陽極、有機ホール輸送層、有機電子輸送層、及び陰極が順次積層されている、請求項4又は5に記載した電界発光素子。

【請求項9】 光学的に透明な基体上に、陽極、有機ホール輸送層、有機電子輸送層、及び陰極が順次積層されている、請求項6に記載した電界発光素子。

【請求項10】 カラーディスプレイ用の有機電界発光素子として構成されている、請求項1に記載した電界発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、電界発光素子（例えば、自発光の平面型ディスプレイであって、特に、有

機薄膜を電界発光層に用いる有機電界発光ディスプレイに好適な電界発光素子）に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】近年、マルチメディア指向の商品を初めとして、人間と機械とのインターフェースの重要性が高まってきている。人間がより快適に効率良く機械操作するためには、操作される機械からの情報を誤りなく、簡潔に、瞬時に、十分な量で取り出す必要があり、そのために、ディスプレイを初めとする様々な表示素子について研究が行われている。

【0003】中でも、軽量で高効率のフラットパネルディスプレイは、例えばコンピュータやテレビジョンの画面表示用として期待されている。一方、ブラウン管は輝度が高く、色再現性が良いため、現在ディスプレイとして最も多く使われているが、嵩高く、重く、また消費電力も高いということも今後解決すべき問題である。

【0004】フラットパネルディスプレイとしては、アクティブマトリックス駆動の液晶ディスプレイが既に商品化されている。しかしながら、視野角が狭く、また、自発光でないため周囲が暗い環境下ではバックライトの消費電力が大きいことや、今後実用化が期待されている高精細度の高速のビデオ信号に対して十分な応答性能を有していない等の問題点もある。更に、大画面サイズのディスプレイを製造するにはコストが高い等の課題もある。

【0005】これに対する代替として、発光ダイオードが可能性があるが、やはり製造コストが高く、また1つの基板上に発光ダイオードのマトリックスを製造することが難しい等の問題があり、ブラウン管に代わる低価格のディスプレイの候補としては、実用化までの課題が大きい。

【0006】上記の諸課題を解決できる可能性のあるフラットパネルディスプレイの候補としては、最近有機発光材料が注目されている。これは、有機発光材料を用いることにより、自発光で、応答速度が高速であり、これにより視野角依存性の無いフラットパネルディスプレイの実現が期待されている。

【0007】図13は、有機発光材料を用いた従来の有機EL（エレクトロルミネセンス）素子10の一例を示す。この有機EL素子10は、透明基板（例えばガラス基板）6上に、ITO（Indium tin oxide）透明電極5、ホール輸送層4、発光層3、電子輸送層2、陰極（例えばアルミニウム電極）1を例えば真空蒸着法で順次製膜したダブルヘテロ型である。

【0008】そして、陽極である透明電極5と陰極1との間に直流電圧7を選択的に印加することによって、透明電極5から注入されたキャリアとしてのホールがホール輸送層4を経て、また陰極1から注入された電子が電子輸送層2を経て移動し、電子-ホールの再結合が生じ、ここから所定波長の発光8が生じ、透明基板6の側

10

20

30

40

50

から観察できる。

【0009】発光層3には、例えばアントラセン、ナフタリン、フェナントレン、ピレン、クリセン、ベリレン、プタジエン、クマリン、アクリジン、スチルベン、ユーロピウム錯体等の発光物質を使用してよい。これは、電子輸送層2に含有させることができる。

【0010】図14は、有機発光材料を用いた別の従来例を示すものであり、発光層3を省略し、電子輸送層2に上記の如き発光物質を含有させ、電子輸送層2とホール輸送層4との界面から所定波長の発光18が生じるように構成したシングルヘテロ型の有機EL素子20を示すものである。

【0011】図15は、上記の有機EL素子の具体例を示す。即ち、各有機層（ホール輸送層4、発光層3又は電子輸送層2）の積層体を陰極1と陽極5との間に配するが、これらの電極をマトリックス状に交差させてストライプ状に設け、輝度信号回路40、シフトレジスタ内蔵の制御回路41によって時系列に信号電圧を印加し、多数の交差位置（画素）にてそれぞれ発光させるように構成している。

【0012】従って、このような構成により、ディスプレイとしては勿論、画像再生装置としても使用可能となる。なお、上記のストライプパターンをR（赤）、G（緑）、B（青）の各色毎に配し、フルカラー又はマルチカラー用として構成することができる。

【0013】こうした有機EL素子を用いた、複数の画素からなる表示デバイスにおいて、発光する有機薄膜層2、3、4は一般に、透明電極5と金属電極1との間に挟まれており、透明電極5側で発光する。

【0014】上記のように、有機発光素子の構成は、透光性の正極と金属からなる陰極との間に発光材料を含む有機薄膜を形成したものである。

【0015】ベリレン薄膜をダブルヘテロ構造の有機電界発光素子の赤色発光に用いた例がC. Adachi、S. Tokito、T. Tsutsui、S. Saito 等によりJapanese Journal of Applied Physics 第27巻2号 L269～L271頁（1988年）に報告されている。更に、ベリレン誘導体を発光材料に使用した研究もある。

【0016】例えば、M. Hiramoto、T. Imahigashi、M. Yokoyama 等はApplied Physics Letters 第64巻2号 187～188 頁掲載の研究報告に金電極の間にN, N'-dimethyl-3, 4, 9, 10-perylenedicarboimide薄膜を挟持して用いている。

【0017】また、T. Katsunme、M. Hiramoto、M. Yokoyama 等のApplied Physics Letters 第64巻 19号 2546～2548頁掲載の研究報告では、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子の発光層としてN, N'-bis(2, 5-di-tert-butylphenyl)-3, 4, 9, 10-perylenedicarboimide薄膜をホール輸送層と電子輸送層の間に挟持して用いている。

【0018】ユーロピウム錯体に関しては、例えばJ. Kido、K. Nagai、Y. Okamoto、T. Skotheim 等はChemistry Letters、1991年 1267～1270頁掲載の研究報告において、tris(theonyltrifluoroacetato) Eu(III) 錯体をpoly(methylphenylsilane)中に含ませて赤色発光を得ている。

【0019】また、J. Kido、H. Hayase、K. Hongawa、K. Nagai、K. Okuyama等はApplied physics Letters 第65巻 17号 2124～2126頁（1994年）掲載の研究報告において、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子の発光層としてtris(1, 3-diphenyl-1, 3-propanedino)(1, 10-phenanthroline) Eu(III) 錯体を2-(4-biphenyl)-5-phenyl-1, 3, 4-oxazol中に含ませて用いている。

【0020】また、N. Takada、T. Tsutsui、S. Saito 等はJapanese Journal of Applied Physics 第33巻 Part2 第6B号 L863～L866頁（1994年）において、tris(theonyltrifluoroacetato)(4, 7-diphenyl-1, 10-phenanthroline) Eu(III) 錯体薄膜をダブルヘテロ構造の有機電界発光素子の発光層として使用した微小光共振器の研究を報告している。

【0021】更に、T. Sano、M. Fujita、T. Fujii、Y. Hamada 等はJapanese Journal of Applied Physics 第34巻 Part1 第4A号 1883～1887頁に掲載の研究報告において、tris(theonyltrifluoroacetato)(1, 10-phenanthroline) Eu(III) 錯体を電子輸送層に含ませて赤色発光を得ている。

【0022】上記したように、各種の発光材料を用いることにより赤色の発光も得られているが、色純度、輝度、安定性等については解決すべき問題を抱えており、新しい赤色発光材料の開発が課題となっている。

【0023】C. W. TangとS. A. VanSlyke等はApplied Physics Letters 第51巻 12号913～915頁（1987年）掲載の研究報告において、有機薄膜を正孔輸送性材料からなる薄膜と電子輸送材料からなる薄膜の2層構造として、それぞれの電極から有機薄膜中に注入されたホールと電子が再結合することにより発光するものであり、上記した図2のようないわゆるシングルヘテロ型の素子構造を開発した。

【0024】これは、上記した如く、正孔輸送材料または電子輸送材料のいずれかが発光材料を兼ねており、発光は発光材料の基底状態と励起状態のエネルギーギャップに対応した波長帯で起きる。このような2層構造とすることにより、大幅な駆動電圧の低減、発光効率の改善が行われた。

【0025】その後、C. Adachi、S. Tokito、T. Tsutsui、S. Saito等のJapanese Journal of Applied Physics 第27巻 2号 L269～L271頁（1988年）掲載の研究報告に記載されているような、正孔輸送

材料、発光材料、電子輸送材料の3層からなるいわゆるダブルヘテロ構造、更にC. W. Tang, S. A. VanSlyke、C. H. Chen等のJournal of Applied Physics 第65巻9号 3610~3616頁(1989年)掲載の研究報告に記載されている、電子輸送材料中に発光材料を含ませた素子構造等が開発された。

【0026】これらの研究により、低電圧で、高輝度の発光の可能性が実証され、近年研究開発が非常に活発に行われている。

【0027】しかしながら、実用化するまでには解決しなければならない多くの課題を抱えているのが現状である。その中で、色純度が良好で高輝度で安定に優れた赤色発光材料の開発が重要な課題となっている。これまでに報告のある赤色発光材料としては、赤色蛍光性の有機色素、ユーロピウム金属錯体等があるが、未だ十分ではなかった。

【0028】例えば、蛍光性有機色素に関しては、C. W. Tang, S. A. VanSlyke, C. H. Chen等はApplied Physics Letters 第51巻 12号 913~915頁(1987年)掲載の研究報告において、4-dicyanomethylene-2-methyl-6-(p-dimethylaminostyryl)-4H-pyran を電子輸送材料中に含ませて使用している。

【0029】また、J. Kido、M. Miura、K. Nagai等はScience 第267巻 1332~1334頁(1995年)掲載の研究報告において、白色発光有機電界発光素子を構成する赤色発光材料として、Nile Redを電子輸送材料中に含ませて用いている。

【0030】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記のような事情に鑑みてなされたものであって、R(赤)、G(緑)、B(青)の三原色の発光色のうち、特に赤色について色純度が良好で高輝度かつ安定な発光が得られるような電界発光素子を提供することを目的とするものである。

【0031】

【課題を解決するための手段】本発明者は、上記の目的を解決するために鋭意検討を重ねた結果、その効果的な方法を見出し、本発明に到達したものである。

【0032】即ち、本発明の電界発光素子は、発光領域を含む有機層が電極上に設けられている電界発光素子において、前記発光領域にクォータテリレン又はその誘導体が発光材料として用いられていることを特徴とする電界発光素子に係るものである。

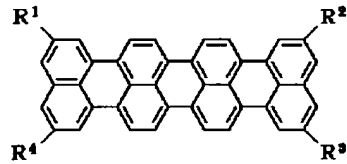
【0033】これによれば、クォータテリレン又はその誘導体の使用により安定した発光を得ることができる。

【0034】

【発明の実施の形態】本発明による電界発光素子では、前記クォータテリレン又はその誘導体が下記の一般式で表されるものを用いることが望ましい。

【化2】

一般式：



(但し、この一般式において、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>及びR<sup>4</sup>は水素原子、アルキル基、アルコキシ基、又は置換若しくは無置換のフェニル基を表し、互いに同一であってもよく、異なってもよい。)

【0035】そして、上記の素子は、前記発光領域が主として有機ホール輸送層であり、このホール輸送層に前記クォータテリレン又はその誘導体が含まれていることが望ましい。

【0036】また、上記の素子は、前記発光領域が主として有機電子輸送層であり、この電子輸送層に前記クォータテリレン又はその誘導体が含まれていてもよく、この場合、前記クォータテリレン又はその誘導体が、有機電子輸送層兼発光層として用いられていてもよい。

【0037】そして、上記の素子は、有機ホール輸送層と有機電子輸送層との間に設けられた有機発光層に前記クォータテリレン又はその誘導体が含まれていることが望ましい。

【0038】更に、上記の素子は、光学的に透明な基体上に、陽極、有機ホール輸送層、有機電子輸送層、及び陰極が順次積層されていることが望ましい。

【0039】これにより、上記の素子は、カラーディスプレイ用の好適な有機電子発光素子として構成することができる。

【0040】

【実施例】以下、本発明の実施例を説明するが、本発明が以下の実施例に限定されるものでないことは勿論である。

【0041】図1及び図2は実施例による有機EL素子を示す概略断面図であり、図1はシングルヘテロ型の有機EL素子35、図2はダブルヘテロ型の有機EL素子36である。

【0042】そして、これらの有機EL素子35、36には、図3に示す一般式で表されるところのクォータテリレン又はその誘導体15を発光材料として用いている。この一般式において、上述のR<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>又はR<sup>4</sup>は水素原子、アルキル基、アルコキシ基、又は置換若しくは無置換のフェニル基を表す。

【0043】そして、図1は、基板(例えばガラス)6上に陽極としてのITO透明電極5、ホール輸送層4、電子輸送層2、陰極としての例えばA1電極1を順次積層した有機EL素子であり、電子輸送層2又はホール輸送層4に上記のクォータテリレン又はその誘導体15を混在(混合割合は1~50重量%、望ましくは1~10

重量%が好ましい。)させ、これらが発光層を兼ねた構造になっている。

【0044】また、図2は基板(例えばガラス)6上に陽極としての透明電極5、ホール輸送層4、電子輸送層2、陰極としての例えばA1電極1を順次積層した有機EL素子において、ホール輸送層4と電子輸送層2との間に独立した発光層3として上記のクォータテリレン又はその誘導体15(厚みは5~50nmが好ましい)を使用したものである。

【0045】本実施例の有機EL素子35、36の材料としては、基板6としては、ガラスのほか、プラスチック等の適宜の材料を用いることができる。

【0046】また、透明電極5としては、ITOのほか、SnO<sub>2</sub>等が使用できる。透明電極5と有機層の間に電荷物注入効率を改善する目的で有機物若しくは有機金属化合物からなる薄膜を挟持させてもよい。

【0047】また、ホール輸送層4としては、例えば芳香族アミン類、ピラゾリン類等の公知の種々の材料を使用できる。ホール輸送層4は単層であってもよいし、電荷輸送性能を上げるための積層構造としてもよい。ホール輸送層4にクォータテリレン又はその誘導体15を使用する場合には、少なくとも1層以上のホール輸送層中に含ませて使用することが好ましい。

【0048】また、クォータテリレン又はその誘導体15は単独の層として使用してもよく、電子輸送材料中に含ませても使用できる。発光層3は単層のほか、電子輸送材料からなる薄膜と発光材料を電子輸送材料中に含ませた薄膜との積層構造、或いは電子輸送材料からなる薄膜と発光材料だけからなる薄膜の積層構造にしてもよい。

【0049】また、電子輸送層4としては、アルミニウムや亜鉛の金属錯体化合物、芳香族炭化合物、オキサジアゾール系化合物等が使用できる。

【0050】また、陰極1の電極材料としては、Li、Mg、Ca等の活性な金属とAg、Al、In等の金属との合金或いは積層した構造にすることができる。また、陰極1の厚さを調節することにより、用途に合った光透過率が得られる透過型の有機EL素子も作製できる。この場合、金属電極1の上に電気的接続を安定に保つためにITOからなる透明電極を併設すると効果的である。

【0051】また、保護層9としては、有機EL素子35、36全体を覆う構造とすることにより封止効果が上がり、気密性が保たれれば、適宜の材料を使用することができる。

【0052】上記の如く、クォータテリレン又はその誘導体15は、ホール輸送層4、発光層3及び電子輸送層2に含ませて使用することができる。更に、ホール輸送層4、発光層3、電子輸送層2以外に、発光効率を改善する目的で、ホールまたは電子の輸送を制御するための

薄膜をホール輸送層4又は電子輸送層2の層構成に含ませることができる。

【0053】次に、上記の如く、本実施例に用いたクォータテリレン(図3参照)のうち、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>及びR<sup>4</sup>がすべてR=tert-ブチル基であるクォータテリレン誘導体の合成について図4により説明する。図4は、このクォータテリレン15の合成過程を示す図である。

【0054】本実施例に用いるクォータテリレン又はその誘導体15は、例えばKarl-Heinz KochとKlaus MuelenがChem. Ber. 第124巻 2091~2100頁(1991年)に報告している合成方法に準じて得ることができる。この合成方法の一般ルートは図4に示すように、最終生成物内に存在する置換基に対応したナフタレンの2,7-置換体から出発し、次いで臭素化により1-bromo-3,6-置換体とし、臭素を碲素酸に変え、ナフタレンの1,4-臭素置換体とカップリングさせた後に、アニオン環化により目的物を得るという反応である。

【0055】次に、具体例として、2,5,12,15-Tetra-tert-butylquaterterryleneの(R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>はすべてtert-ブチル基)合成方法を述べる。他の誘導体もこの方法に準じて得ることができる。

【0056】出発物質の2,7-Di-tert-butyl-naphthaleneは以下に述べる方法で調製した。ナフタレン200gとtert-butylchloride 480gの混合物に、300mgの塩化アルミニウムを加えた。ガス状の塩化水素の発生を伴う激しい反応が起きた後、約30分後に反応混合物は固化した。反応を完全に行わせるために、混合物をウォータバス上でさらに3時間加熱した。冷却後、混合物を室温で8時間放置した。

【0057】固体の混合物を3.31の沸騰エタノールに溶解し、210gのチオ尿素を加えた。そしてこれを冷却後に濾過して濾液を集めた。最初に210g、次いで80gのチオ尿素を使用して上記と同様の処理を行った。

【0058】溶媒を取り除いた後、残留物を300mlの水を用いて粉砕し、クロロホルムを用いて3回抽出を行った。有機層を硫酸マグネシウム上で乾燥させてから濾過し、溶媒を蒸発させて125gの目的物を得た。反応収率はナフタレンを基準にして34%であった。

【0059】次に、1-Bromo-3,6-di-tert-butyl-naphthaleneを得るために臭素化を行った。33gの2,7-Di-tert-butyl-naphthaleneを400mlの四塩化炭素に溶解し、300mgの触媒量の鉄粉を加えた。22.4mgの臭素を100mlの四塩化炭素に溶かした液を、滴下ロートを用いて1時間かけて室温下で加えた。反応は暗所で行い、8時間攪拌した後、0.5M水素化ナトリウム水溶液300mlを加えて水和し、

混合物を1時間攪拌した。

【0060】次に、有機層を分離し、硫酸マグネシウム上で乾燥、濾過した。溶媒を蒸発させた後、残留物をメタノールから再結晶して27gの目的物を得た。反応収率は80%であった。

【0061】1-Bromo-3,6-di-tert-butyl-naphthaleneの硝素酸化は次のように行った。1-Bromo-3,6-di-tert-butyl-naphthalene 25gを250mlの乾燥ジエチルエーテルに溶解して、窒素下で-78℃に冷却した。シリンジを通して、2.5Mのブチルリチウムのヘキサン溶液38mlを注入して混合物を1時間攪拌した後、クーリングバスを除いた。

【0062】そして、別の反応容器中にアリアルプロマイドを基準にして2.8倍のモル量、即ち44.2gのトリイソプロポキシボランを乾燥し、ジエチルエーテルに溶解した液250mlを入れ、窒素下で-78℃に冷却する。強力に攪拌しながら、既に調製した有機リチウム化合物を金属製の外套管を用いて約1時間かけてゆっくりと加えた。完全に加えた後、混合物を低温で1時間攪拌し、更に室温で8時間攪拌した。

【0063】次いで、混合物を2Mの塩酸水溶液300mlで30min間水化した。これを層分解して有機層を硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を蒸発させた。残留物を低沸点の石油エーテル100mlに溶解し、10mlの水を加え、混合物を室温で攪拌した。

【0064】そして約12時間後、生成物は細かい無色の結晶として沈澱した。生成物は吸引濾過し、少量の石油エーテルで洗浄後、真空デシケータ中(60℃、20 Torr)で乾燥させた。得られた3,6-Di-tert-butyl-1-(dihydroxyboryl)naphthalene は15gであり、収率は67%であった。融点は270℃で文献値と一致した。

【0065】3,6-Di-tert-butyl-1-(dihydroxyboryl)naphthalene と4,4'-dibromo-1,1'-binaphthylとのカップリング反応はパラジウム触媒を用い、窒素雰囲気下で暗所で行った。

【0066】そして、3,6-Di-tert-butyl-1-(dihydroxyboryl)naphthalene (3.0g、10.6mmol)、4,4'-dibromo-1,1'-binaphthyl (1.98g、4.8mmol)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0) (340mg、0.3mmol)を20mlのトルエン中に懸濁させ、2M炭酸カリウム水溶液10mlを加え、この混合物を強力に攪拌しながら3日間還流した。

【0067】そして、シリカゲル上のクロマトグラフィで、展開液をシクロヘキサンから始め、次第にクロロホルム(シクロヘキサン/クロロホルム(5:1 v/v))を加えながら精製した。目的物質の純度は、薄層クロマトグラフィで展開液に石油エーテルを用いることにより確認した。溶媒を気化した後、目的物質である

3,3'',6,6''-Tetra-tert-butyl-1,1':4',1'':4'',1'''-quaternaphthylene を2.7g得た。収率は69%であった。融点236-238℃であり、文献値と一致した。

【0068】3,3'',6,6''-Tetra-tert-butyl-1,1':4',1'':4'',1'''-quaternaphthylene の環化反応は2段階で行った。まず、3,3'',6,6''-Tetra-tert-butyl-1,1':4',1'':4'',1'''-quaternaphthylene から8,8',1,11'-Tetra-tert-butyl-3,3'-biperylenyl を合成し、次いでこれを環化して目的物である2,5,12,15-Tetra-tert-butylquaterteryleneを得た。8,8',1,11'-Tetra-tert-butyl-3,3'-biperylenyl の合成は純アルゴンガス中で湿度がない状態で行った。

【0069】次に、3,3'',6,6''-Tetra-tert-butyl-1,1':4',1'':4'',1'''-quaternaphthylene 2.3gを150mlの乾燥1,2-ジメトキシエタンに溶解した。Schlenk 型反応フラスコを用いることにより、アルゴン気流下での調製が可能である。酸化層を取り除いたカリウムを小片に切断したものを1.8g加えた。溶液は真空中で凍結-融解サイクルを繰り返して10<sup>-3</sup>Torrに脱気した。

【0070】そして、フラスコを封止して反応を真空中で行い、混合物は室温で7日間攪拌した。残ったカリウムをアルゴン中で除き、昇華したばかりの塩化カドミウム2.5gを加えた。次に、混合物を1日間攪拌して濾過した後、固形物をクロロホルムで洗浄した。クロマトグラフィ(シクロヘキサン/クロロホルム(1:0から5:1 v/v))によって精製することにより、8,8',1,11'-Tetra-tert-butyl-3,3'-biperylenyl 1.1gを得た。収率は48%であった。

【0071】また、500mgの8,8',1,11'-Tetra-tert-butyl-3,3'-biperylenyl、500mgの無水塩化アルミニウムと500mgの無水塩化第二銅を80mlの硫化炭素中、窒素雰囲気下、室温で8時間攪拌した。反応の終わりに、暗い黒緑色の不溶の沈澱が生成した。デカンテーションした後、残留物を氷と希薄アンモニア水溶液を用いて水化した。有機層が4bによる青色を示さなくなるまで、懸濁液を少量のクロロベンゼン(30ml)で繰り返し抽出した。

【0072】これを硫酸マグネシウムで乾燥した後、有機層を濾過して溶媒を気化した。残留物を60mlのクロロホルムに懸濁させ、5gの酸化アルミニウムを加えた。溶媒を気化させて、生成物でコートされた酸化アルミニウムを得た。これを酸化アンモニウムのカラムクロマトグラフィ(シクロヘキサン/クロロホルム(5:1 v/v))にかけた。この混合溶媒を展開液として用いると、副生成物(ペリレン色素)だけが抽出される。

【0073】そして、クォータテリレンは、窒素中で乾



## 11

燥したカラムパッキングをクロロホルムで還流して抽出することにより回収した。溶媒を気化して得た沈澱物を濾過し、最終目的物である2, 5, 12, 15-Tetra-tert-butylquaterteryleneを240mg得た。収率は48%であった。暗い青色の固体は赤みを帯びた光沢を示した。溶液中では顕著な蛍光を示した。融点は520℃であり、文献値と一致した。

【0074】上述した本実施例の有機EL素子35、36に用いたクォータテリレン又はその誘導体15は上記のようにして作製したものである。そして、このような本実施例の有機EL素子は、例えば図5のような真空蒸着装置11を用いて作製される。図5はこの装置の概略断面図である。

【0075】この装置11の内部には、アーム12の下に固定された一対の支持手段13が設けられ、この双方の固定手段13、13の間には、透明ガラス基板6を下向きにし、マスク22をセットできるステージ機構(図示省略)が設けられている。そして、ガラス基板6及びマスク22の下方には、支軸14aに支持されたシャッター14が配置され、その下方に所定個数の各種蒸着源28を配置する。各蒸着源は、電源29による抵抗加熱方式で加熱される。この加熱には、必要に応じてEB(電子線)加熱方式等も使用される。

【0076】上記の装置において、マスク22は画素用であり、シャッター14は蒸着材料用である。そして、シャッター14は支軸14aを中心に回転し、蒸着材料の昇華温度に合わせて、材料の蒸気流を遮断するためのものである。

【0077】図6は、上記の真空蒸着装置により作製した有機EL素子21の具体例を示す平面図である。即ち、サイズLが30mm×30mmのガラス基板6上に、サイズが2mm×2mmのITO透明電極5を上記した真空蒸着装置により所定の厚さで蒸着後に、全面にSiO<sub>2</sub>30を蒸着し、これを所定の画素パターンにエッチングして多数の開口31を形成し、ここに透明電極5をそれぞれ露出させる。従って、SiO<sub>2</sub>によって形成した2mm×2mmの発光領域(画素)PXに対し蒸着マスク22を用いて各有機層4、3、2及び金属電極1を順次形成する。

【0078】この真空蒸着装置11においては、上記した図6のような多数の画素を有するもの以外に、サイズの大きい画素を単独に形成することもできる。

【0079】本実施例においては、上述の図1及び図2に示した如く、ホール輸送層4又は電子輸送層2に例えばクォータテリレン又はその誘導体15を発光材料として含有させる構造と、ホール輸送層4と電子輸送層2との間に、例えばクォータテリレン又はその誘導体15により独立の発光層を設ける構造とを基本として、具体例を作製しそれぞれの発光特性を評価した。以下にその具体例を説明する。

## 12

【0080】図7～図11は、この具体例による有機EL素子を示す概略断面図である。

【0081】＜具体例1＞上記した図6の真空蒸着装置11により、ITO透明電極5を例えば2mm×2mmサイズで形成したガラス基板6を、蒸発源28の上方25cmの位置に支持手段13により固定し、膜形成部分に対応する開口部を設けた蒸着マスク22をガラス基板6と蒸発源28の間に挿入し、 $<10^{-6}$ Torrの真空下で電源29を通電させ、抵抗加熱法により有機EL素子を作製した。この素子の発光面積は2mm×2mmである(以下の各具体例も同様である)。

【0082】上記のITO透明電極5の上に、ホール輸送層4として、N, N'-diphenyl-N, N'-bis(3-methylphenyl)1, 1'-biphenyl-4, 4'-diamine(以下、単にTPDと称する。)とクォータテリレン15とを別々の蒸発源から蒸発させ、TPDとクォータテリレンとの混合比は重量比で10:1の混合膜を形成した。この蒸着に際しては、2個の水晶振動式膜厚計を用いてそれぞれの蒸発速度を監視し、膜中に含まれるクォータテリレン又はその誘導体(ここでは、上述の一般式でR=tert-ブチル基:以下、同様)15の組成を制御した。そして、全体の蒸発速度は0.2~0.4nm/sの間に制御し、ホール輸送層4の膜厚は50nmに形成した。

【0083】そしてこの上に、ホール輸送層4中での発光を効率良く行わせるために、発光促進層16として、2, 9-dimethyl-4, 7-diphenyl-1, 10-phenanthreneをホール輸送層4上に15nmの厚さに蒸着した。

【0084】次に、この上に電子輸送層2を50nmの厚さに形成した。電子輸送材料としては、tris-(8-hydroxyquinoline)aluminum(以下、単にAlq<sub>3</sub>と称する。)を用い、上記と同様に、蒸着膜の形成は水晶振動式膜厚計を用いて蒸発速度を0.2~0.4nm/sの間に制御して行った。

【0085】次に、この上に陰極1の金属としてアルミニウムを使用し、同じ真空蒸着装置11で抵抗加熱により200nmの厚さに蒸着して有機EL素子37を形成した。

【0086】この具体例において、ホール輸送材料としてはTPD、電子輸送材料としてはAlq<sub>3</sub>を使用しているが、これ以外の適宜の材料を使用することができ、これは以下の具体例についても同じである。

【0087】上記のように作製した具体例1の有機EL素子37について、窒素雰囲気下で素子の発光特性を評価した。分光測定には、大塚電子製のフォトダイオードアレイを検出器にした分光器を用いて行った結果、この素子により赤色の発光色が得られ、図12に示すように、670nm(赤色波長)付近に発光極大のあるスペクトルを得た。750nm付近に大きなピークがある

が、これは実質的に可視波長領域の外にあり、色度には著しい影響を与えるものではない。

【0088】従って、この発光がクォータテリレン又はその誘導体15に因るものであることが確認できた。そして、更に電圧を順次加えて、輝度計により輝度を測定した。その結果、印加電圧の上昇とともに、流れる電流値、輝度が増加し、印加電圧が15Vのときに420cd/m<sup>2</sup>の輝度を得た。そして発光は安定しており、観測中に輝度が著しく減衰することはなかった。

【0089】＜具体例2＞この例においても、上記した具体例1と同様に形成した基板6上のITO透明電極5の上に、ホール輸送材料としてTPDを蒸発ポートから蒸発させ、ホール輸送層4を形成した。蒸発速度は0.2~0.4nm/sの間に制御し、ホール輸送層4の膜厚は50nmに形成した。

【0090】そしてその上に、電子輸送材料としてAlq<sub>3</sub>を使用し、Alq<sub>3</sub>とクォータテリレン又はその誘導体15を別々の蒸発ポートから蒸発させて電子輸送層2Aの混合膜（Alq<sub>3</sub>とクォータテリレンとの混合比は10:1（重量比））を形成した。この場合も、2個の水晶振動式膜厚計を用いて、それぞれの蒸発速度を個別に制御した。そして、全体の蒸発速度はホール輸送層4形成時と同じく0.2~0.4nm/sの間に制御し、50nmの厚さに形成した。

【0091】次に、この上に、陰極1の金属としてアルミニウムを使用し、同じ真空蒸着装置11で抵抗加熱により200nmの厚さに蒸着して有機EL素子38を形成した。

【0092】上記のように作製した具体例2の有機EL素子38について、窒素雰囲気下で素子の発光特性を評価した。この分光測定には、上記した具体例1の場合と同じ分光器を用いて行った結果、この素子により赤色の発光色が得られ、具体例1と同様に670nm付近に発光極大があるスペクトルが得られ、発光がクォータテリレン又はその誘導体15に因るものであることが確認できた。

【0093】更に電圧を順次加えて、輝度計により輝度を測定した。その結果、赤色の発光強度はAlq<sub>3</sub>中のクォータテリレン又はその誘導体15の濃度に依存し、Alq<sub>3</sub>中のクォータテリレン15の濃度が0.1~2.0mol%（望ましくは0.2~1.0mol%）の範囲にあるとき最大となった。そして、印加電圧の上昇と共に、流れる電流値、輝度が増加し、印加電圧が11Vのときに350cd/m<sup>2</sup>の輝度を得た。この発光は安定しており、観測中に輝度が著しく減衰することはない。

【0094】＜具体例3＞この例においても、上記した具体例1と同様に形成した基板6上のITO透明電極5の上に、ホール輸送材料としてTPDを蒸発ポートから蒸発させ、ホール輸送層4を形成した。蒸発速度は0.

2~0.4nm/sの間に制御し、ホール輸送層4の膜厚は50nmに形成した。

【0095】そしてその上に、電子輸送材料としてクォータテリレン又はその誘導体15を用い、電子輸送層兼発光層を形成した。蒸発速度はホール輸送層4形成時と同じく0.2~0.4nm/sの間に制御し、例えば20nm（好ましくは15~20nm）の厚さに形成した。

【0096】次に、この上に陰極1の金属としてアルミニウムを使用し、同じ真空蒸着装置11で抵抗加熱により200nmの厚さに蒸着して有機EL素子39を形成した。

【0097】上記のように作製した具体例3の有機EL素子38について、窒素雰囲気下で素子の発光特性を評価した。分光測定には、上記した具体例1の場合と同じ分光器を用いて行った結果、この素子により赤色の発光色が得られ、具体例1と同様に670nm付近に発光極大のあるスペクトルを得られ、発光がクォータテリレン又はその誘導体15に因るものであることが確認できた。

【0098】そして、更に電圧を順次加えて、輝度計により輝度を測定した。その結果、印加電圧の上昇と共に、流れる電流値、輝度が増加し、印加電圧が19Vのときに220cd/m<sup>2</sup>の輝度を得た。この場合、上記の具体例2よりも電子輸送層2Bの膜厚が薄いにもかかわらず、高電圧で輝度が低いのは、クォータテリレン又はその誘導体15の電子輸送性能がAlq<sub>3</sub>よりも劣っているためと考えられる。しかし、発光は安定しており、観測中に輝度が著しく減衰することはない。

【0099】＜具体例4＞この例においても、上記した具体例1と同様に形成した基板6上のITO透明電極5の上に、ホール輸送材料としてTPDを蒸発ポートから蒸発させ、ホール輸送層4を形成した。蒸発速度は0.2~0.4nm/sの間に制御し、ホール輸送層4の膜厚は50nmに形成した。

【0100】次に、その上に電子輸送材料としてAlq<sub>3</sub>を使用し、両面に設けたAlq<sub>3</sub>の単一薄膜層2a、2cとAlq<sub>3</sub>とクォータテリレン又はその誘導体15を別々の蒸発ポートから蒸発させた混合膜（Alq<sub>3</sub>とクォータテリレンとの混合比は10:1（重量比））2bとからなる3層構造の電子輸送層2Cを形成した。そして、2個の水晶振動式膜厚計を用いて、それぞれの蒸発速度を個別に制御した。

【0101】この3層構造の電子輸送層2Cの形成は、最初にAlq<sub>3</sub>層2cを10nm厚に真空蒸着した後、Alq<sub>3</sub>とクォータテリレン又はその誘導体15を5~40nm（望ましくは10~30nm）の膜厚に共蒸着した。更にその上に形成するAlq<sub>3</sub>層2aを含む電子輸送層2C全体の膜厚が50nmとなるように蒸着した。蒸発速度はホール輸送層形成時と同じく0.2~

0.4 nm/sの間に制御した。

【0102】この上に、陰極1の金属としてアルミニウムを使用し、同じ真空蒸着装置11で抵抗加熱により200 nmの厚さに蒸着して有機EL素子40を形成した。

【0103】上記のように作製した具体例4の有機EL素子40について、窒素雰囲気下で素子の発光特性を評価した。そして、上記した具体例1の場合と同じ分光器による分光測定の結果、この素子により赤色の発光色が得られ、具体例1と同様に670 nm付近に発光極大のあるスペクトルが得られ、発光がクォータテリレン又はその誘導体15に因るものであることが確認できた。

【0104】更に電圧を順次加えて、輝度計により輝度を測定した。その結果、赤色の発光強度はA1q3中のクォータテリレン15の濃度に依存し、具体例2と同様にA1q3中のクォータテリレン15の濃度が0.1~2.0 mol% (望ましくは0.2~1.0 mol%)の範囲にあるとき最大となった。

【0105】そして、印加電圧の上昇と共に、流れる電流値、輝度が増加し、印加電圧が12Vのときに440 cd/m<sup>2</sup>の輝度を得た。この例が具体例2よりも輝度が上昇したのは、ホールと電子の最適な再結合領域が本具体例の範囲にあり、A1q3の励起状態からクォータテリレン又はその誘導体15へのエネルギーの移動が効率良く生じているためと考えられる。この発光は安定しており、観測中に輝度が著しく減衰することはなかった。

【0106】<具体例5>この例においても、上記した具体例1と同様に形成した基板6上のITO透明電極5の上に、ホール輸送材料としてTPDを蒸発ポートから蒸発させ、ホール輸送層4を膜厚50 nmに形成した。

【0107】そして、その上に、発光層3としてクォータテリレン又はその誘導体15を例えば10 nmの膜厚 (好ましくは10~15 nmの厚さ) に形成した。

【0108】続いてこの上に、電子輸送材料としてA1q3を使用し、50 nmの膜厚の電子輸送層2を形成した。上記の発光層3及びこの電子輸送層2の膜形成時の蒸発速度は水晶振動式膜厚計により0.2~0.4 nm/sの間に制御した。

【0109】そしてこの上に、陰極1の金属としてアルミニウムを使用し、同じ真空蒸着装置11で抵抗加熱により200 nmの厚さに蒸着して有機EL素子41を形成した。

【0110】上記のように作製した具体例5の有機EL素子41について、窒素雰囲気下で素子の発光特性を評価した。分光測定の結果、具体例1と同様に670 nm付近に発光極大のあるスペクトルを得られ、発光がクォータテリレン又はその誘導体15に因るものであることが確認できた。

【0111】更に電圧を順次加えて、輝度計により輝度

を測定した。その結果、印加電圧の上昇と共に、流れる電流値、輝度が増加し、印加電圧が13Vのときに320 cd/m<sup>2</sup>の輝度を得た。この発光は安定しており、観測中に輝度が著しく減衰することはなかった。

【0112】図12は、上記した具体例1による有機EL素子37の発光特性を示すグラフであるが、上記した如く、その他の具体例2~5についてもほぼ具体例1と同様の発光特性が得られた。即ち、いずれも可視波長領域(400~700 nm)においては最大発光波長は約670 nmである。

【0113】これにより、現在、緑色発光材料以外は、ディスプレイに適用可能な十分な安定性、色度、輝度等を兼ね備えたものがないため、各方面で開発段階にある赤色及び青色の材料のうち、赤色については有望な材料が確立される可能性が高くなる。従って、赤色専用やモノカラー用としては本実施例の有機EL素子が有効的に適用できると共に、フルカラーのディスプレイとして利用する場合には、青色や緑色については既知の発光材料を選択使用すればよい。

【0114】上述したように、例えばガラス基板6上に、透明な陽極層5、有機層4、2、金属による陰極層1が順次製膜されてなる有機EL素子の発光材料として、クォータテリレン又はその誘導体15を上記の有機層に含有させて使用するが、ホール輸送層4と有機電子輸送層2との間に挟持させて使用することもできる。いずれも、赤色発光に大きく寄与することができる。

【0115】上記の如くに形成すれば、クォータテリレン又はその誘導体15により図12のようなスペクトルが得られ、有機EL素子として十分な赤色発光輝度を得ることができる。このような現象は、クォータテリレン又はその誘導体15を有機EL素子の層構成における任意の層に添加できるため、赤色発光を得るための効果的な構成を選択することができる。

【0116】しかも、クォータテリレン又はその誘導体は、上述した合成法に基づいて、赤色発光にとって適切な置換基(R)を容易に導入することができる。また、それ自体、或いは電子輸送材料又はホール輸送材料と共に蒸着法等によって所望の濃度及び厚さに成膜することが可能となり、有機EL素子の作製が容易となる。

【0117】本実施例によれば、有機EL素子の発光領域にクォータテリレン又はその誘導体15を設けることにより安定性のある赤色発光を得ることができる。従って、現段階では安定性、色度、輝度共に、ディスプレイに十分応用可能な緑色の発光材料に加え、従来はディスプレイに十分応用可能な材料としては未開発であった色のうちの赤色の材料として実用化の可能性が高い。

【0118】以上、本発明の実施例を説明したが、上述した実施例は本発明の技術的思想に基づいて種々変形することができる。

【0119】例えば、上述したクォータテリレン又はそ

の誘導体の一般式において、Rとしては、tert-ブチル基以外のアルキル基として、メチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基等があり、その炭素原子数は1〜5のものが好適である。Rは更に、同様のアルキル基を有するアルコキシ基、又は同様のアルキル基等で置換された（或いは無置換の）フェニル基であってもよいし、水素原子（この場合はRは置換基ではない。）であってもよい。

【0120】また、このクォータテリレン又はその誘導体は、それ自体が単独に発光材料として用いられてよいが、公知の他の発光材料を併用してもよい。上記の実施例による有機EL素子のITO透明電極5、ホール輸送層4、発光層3、電子輸送層2、金属電極1は、それぞれが複数層からなる積層構造であってもよい。

【0121】また、上記実施例における各有機層は、蒸着以外にも、昇華又は気化を伴う他の成膜方法でも形成可能である。

【0122】また、アノード電極、電子輸送層、ホール輸送層、カソード電極等の材料は上記に限るものではなく、例えばホール輸送層であるならば、ベンジジン誘導体、スチリルアミン誘導体、トリフェニルメタン誘導体、ヒドラゾン誘導体等のホール輸送性有機物質を用いてもよい。同様に、電子輸送層には、ペリレン誘導体、ビススチリル誘導体、ピラジン誘導体等の電子輸送性有機物質を用いてもよい。

【0123】また、カソード電極材料については、効率良く電子を注入するために、電極材料の真空準位からの仕事関数の小さい金属を用いるのが好ましく、アルミニウム-リチウム合金以外にも、例えば、アルミニウム、インジウム、マグネシウム、銀、カルシウム、バリウム、リチウム等の低仕事関数金属を単体で、または他の金属との合金として安定性を高めて使用してもよい。

【0124】また、アノード電極側から有機電界発光を取り出すため、アノード電極には透明電極であるITOを用いたが、効率良くホールを注入するために、アノード電極材料の真空準位からの仕事関数が高いもの、例えば金、二酸化スズ-アンチモン混合物、酸化亜鉛-アルミニウム混合物の電極を用いてもよい。

【0125】なお、モノカラー用の有機EL素子は勿論、発光材料を選択することによって、R、G、Bの三色を発光するフルカラー用、又はマルチカラー用の有機EL素子を作製することができる。その他、本発明はディスプレイ用としてだけでなく、光源用としても使用可能な有機EL素子に適用できると共に、他の光学的用途にも適用することができる。

【0126】

【発明の作用効果】本発明は、上述した如く、発光領域にクォータテリレン又はその誘導体が発光材料として用いられているので、特に赤色発光用として、印加電圧に応じた高輝度で、効率良い安定した特定波長の発光が可能な電界発光素子を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施例による有機EL素子の要部を示す概略断面図である。

【図2】同、他の有機EL素子の要部を示す概略断面図である。

【図3】クォータテリレン又はその誘導体の一般式を示す図である。

【図4】クォータテリレン又はその誘導体の合成順序を示す図である。

【図5】同、実施例に使用した真空蒸着装置の概略断面図である。

【図6】同、実施例に使用した有機EL素子の平面図である。

【図7】同、有機EL素子の具体例の要部を示す概略断面図である。

【図8】同、有機EL素子の他の具体例の要部を示す概略断面図である。

【図9】同、有機EL素子の他の具体例の要部を示す概略断面図である。

【図10】同、有機EL素子の他の具体例の要部を示す概略断面図である。

【図11】同、有機EL素子の更に他の具体例の要部を示す概略断面図である。

【図12】同、クォータテリレンを用いた実施例による有機EL素子の発光特性を示すグラフである。

【図13】従来の有機EL素子の一例を示す概略断面図である。

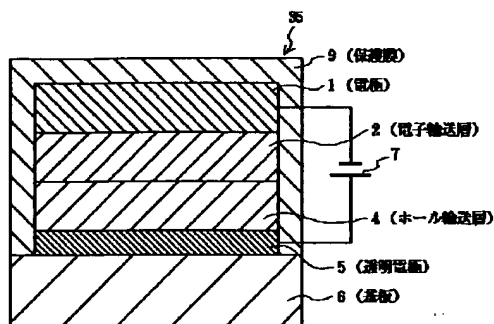
【図14】同、他の有機EL素子の一例を示す概略断面図である。

【図15】同、有機EL素子の具体例を示す概略斜視図である。

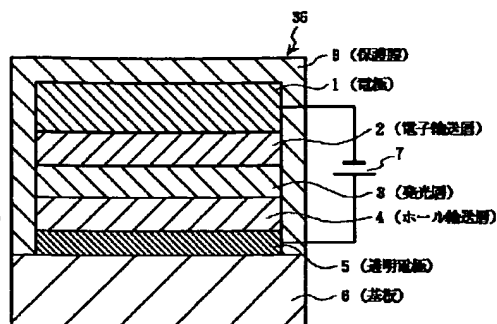
【符号の説明】

1…陰極、2、2A、2B、2C…電子輸送層、3…発光層、4、4A…ホール輸送層、5…ITO透明電極、6…基板、7…直流電圧、8、18、21…発光、9…保護膜、10、20、35、36…有機EL素子、11…真空蒸着装置、12…アーム、13…支持手段、14…シャッター、14a…支軸、15…クォータテリレン、16…発光促進層、18…発光特性、22…マスク、28…蒸着源、29…電源、30…SiO<sub>2</sub>、31…開口

【図1】

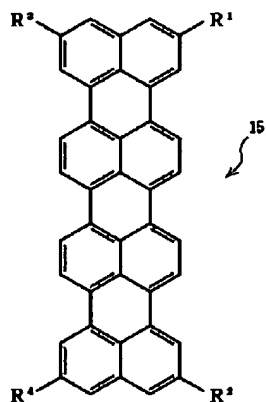


【図2】



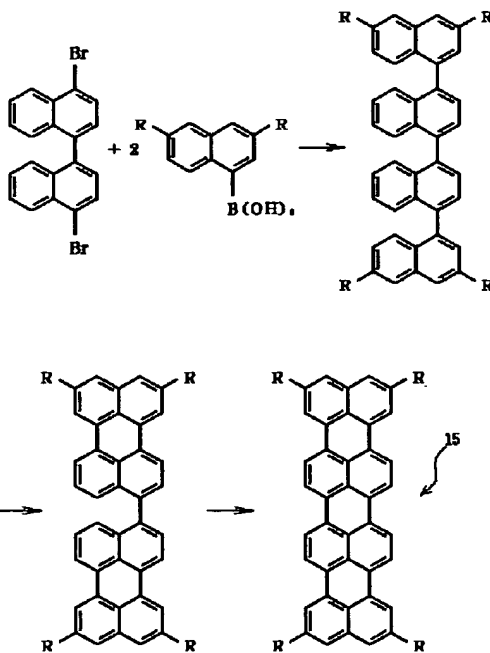
【図3】

クォータテリレン又はその誘導体の一般式：

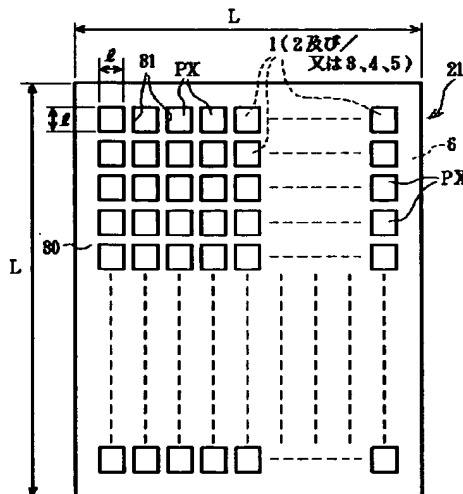


(但し、この一般式において、R¹、R²、R³、及びR⁴は水素原子、アルキル基、アルコキシ基、又は置換若しくは無置換のフェニル基を表し、互いに同じであってよく、異なってもよい。)

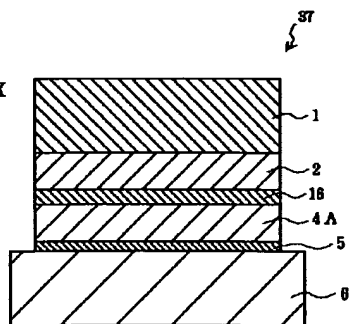
【図4】



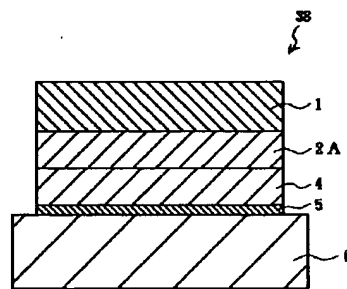
【図6】



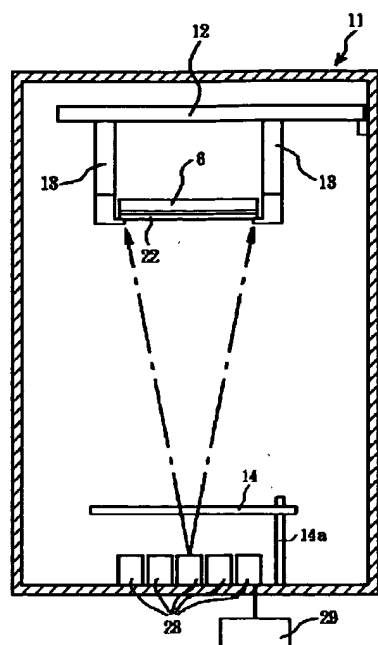
【図7】



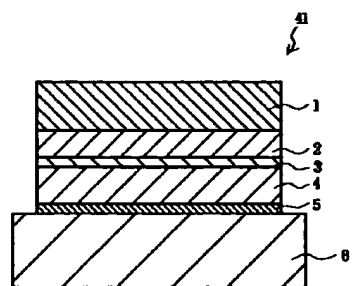
【図8】



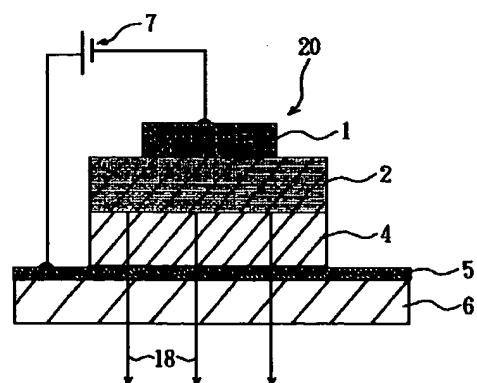
【図5】



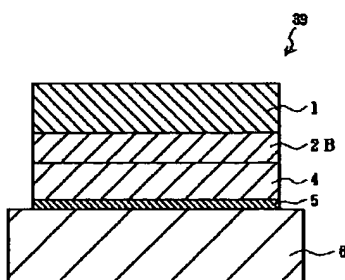
【図11】



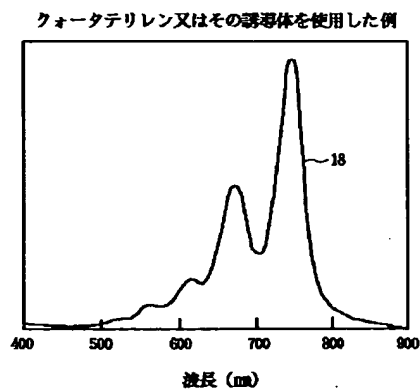
【図14】



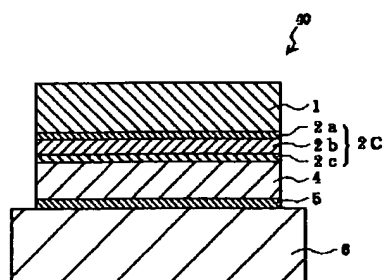
【図9】



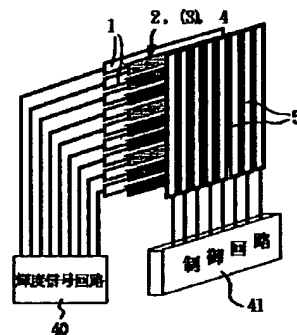
【図12】



【図10】



【図15】



【図13】

